

# EUROPEAN PATENT OFFICE

## Patent Abstracts of Japan

PUBLICATION NUMBER : 2002100377  
PUBLICATION DATE : 05-04-02

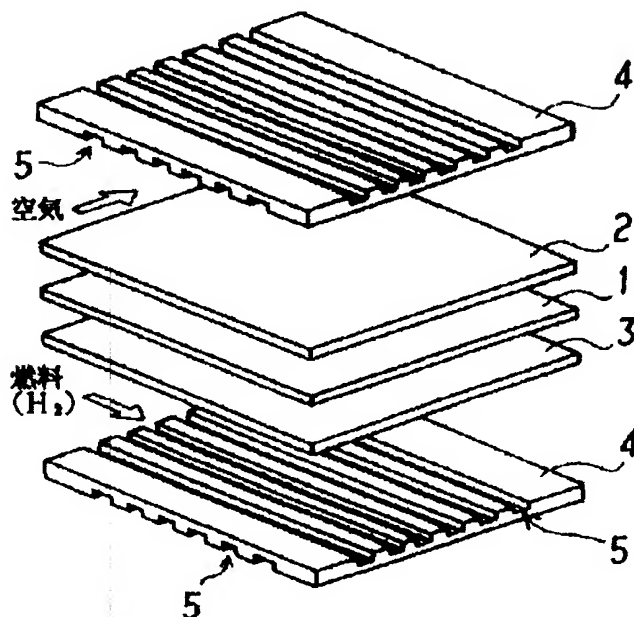
APPLICATION DATE : 20-09-00  
APPLICATION NUMBER : 2000286006

APPLICANT : KAWASAKI STEEL CORP;

INVENTOR : IIZUKA YASUNOBU;

INT.CL. : H01M 8/02 H01M 8/10

TITLE : SEPARATOR FOR FUEL CELL AND  
FUEL CELL



ABSTRACT : PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a separator for fuel cells excellent in dimension accuracy, and in both of conductivity and gas impermeability, and the fuel cell excellent in power generating efficiency.

SOLUTION: The separator for fuel cells is a molded thing that contains a thermoplastic resin: 3 to 30 weight parts to a coarse grain powder of small sphere of meso-carbon made to graphite: 100 weight parts, the above coarse grain powder of the thing made to graphite is the powder of the thing made to graphite having  $50\text{ }\mu\text{m} < \text{grain size} \leq 300\text{ }\mu\text{m}$ , a specific surface area  $\leq 1.5\text{ m}^2/\text{g}$ , and an average aspect ratio of the powder grains  $\leq 3$ . Further the separator for fuel cells has the above molded thing which contains one sort, or two or more sorts chosen from the granule powder of the small sphere of meso- carbon made to graphite, the granule powder of the small sphere of bulk meso- phase pitch made to graphite, a graphite powder, a carbon black, and fine detailed carbon fibers, and the fuel cell uses these separators for fuel cells.

COPYRIGHT: (C)2002,JPO

(19) 日本国特許庁 (J P)

## (12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2002-100377

(P2002-100377A)

(43) 公開日 平成14年4月5日 (2002.4.5)

(51) Int.Cl.<sup>7</sup>H 0 1 M 8/02  
8/10

識別記号

F I

H 0 1 M 8/02  
8/10

サーチコード\* (参考)

B 5 H 0 2 6

審査請求 未請求 請求項の数 5 O L (全 15 頁)

(21) 出願番号 特願2000-286006 (P2000-286006)

(22) 出願日 平成12年9月20日 (2000.9.20)

(71) 出願人 000001258

川崎製鉄株式会社

兵庫県神戸市中央区北本町通1丁目1番28号

(72) 発明者 高野 茂

千葉県千葉市中央区川崎町1番地 川崎製鉄株式会社技術研究所内

(72) 発明者 羽多野 仁美

千葉県千葉市中央区川崎町1番地 川崎製鉄株式会社技術研究所内

(74) 代理人 100099531

弁理士 小林 英一

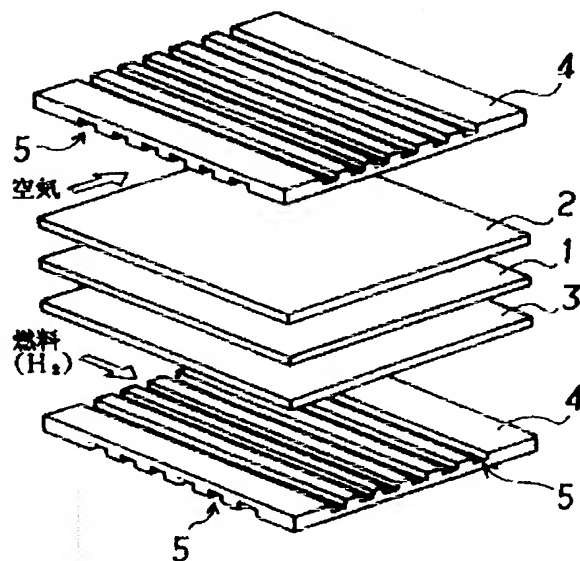
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 燃料電池用セパレータおよび燃料電池

(57) 【要約】

【課題】 寸法精度、導電性およびガス不浸透性のいずれにも優れた燃料電池用セパレータ、並びに発電効率に優れた燃料電池の提供。

【解決手段】 メソカーボン小球体の黒鉛化物粗粒粉末：100重量部に対して熱可塑性樹脂：3～30重量部を含有する成形品であって、前記黒鉛化物粗粒粉末が、 $50\mu\text{m} < \text{粒径} \leq 300\mu\text{m}$ 、比表面積 $\leq 1.5\text{m}^2/\text{g}$ 、粉末粒子の平均アスペクト比 $\leq 3$ の黒鉛化物粉末である燃料電池用セパレータ、および前記成形品が、さらにメソカーボン小球体の黒鉛化物細粒粉末、バルクメソフェーズピッチの黒鉛化物粉末、黒鉛粉末、カーボンブラックおよび微細炭素繊維から選ばれる1種または2種以上を含有する成形品である燃料電池用セパレータ、並びに、これらの燃料電池用セパレータを用いた燃料電池。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 メソカーボン小球体の黒鉛化物粗粒粉末：100重量部に対して熱可塑性樹脂：3～30重量部を含有する成形品であって、前記黒鉛化物粗粒粉末が、 $50\mu\text{m} < \text{粒径} \leq 300\mu\text{m}$ 、比表面積 $\leq 1.5\text{m}^2/\text{g}$ 、粉末粒子の平均アスペクト比 $\leq 3$ の黒鉛化物粉末であることを特徴とする燃料電池用セパレータ。

【請求項2】 前記黒鉛化物粗粒粉末：100重量部に対して粒径が下記式(1)を満足するメソカーボン小球体の黒鉛化物細粒粉末：100重量部以下を含有することを特徴とする請求項1記載の燃料電池用セパレータ。

記

黒鉛化物細粒粉末の粒径 $\leq 50\mu\text{m}$  ……(1)

【請求項3】 前記黒鉛化物粗粒粉末：100重量部に対してバルクメソフェーズピッチの黒鉛化物粉末、黒鉛粉末、カーボンブラックおよび微細炭素繊維から選ばれる1種または2種以上を合計量で100重量部以下含有することを特徴とする請求項1または2記載の燃料電池用セパレータ。

【請求項4】 前記バルクメソフェーズピッチの黒鉛化物粉末の平均粒径が $50\mu\text{m}$ 以下、黒鉛粉末の平均粒径が $50\mu\text{m}$ 以下、カーボンブラックの平均粒径が $100\text{nm}$ 以下、微細炭素繊維の平均繊維径が $2\mu\text{m}$ 以下、平均繊維長が $500\mu\text{m}$ 以下であることを特徴とする請求項3記載の燃料電池用セパレータ。

【請求項5】 請求項1～4いずれかに記載の燃料電池用セパレータを用いたことを特徴とする燃料電池。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、燃料電池用セパレータおよび燃料電池に関し、特に、寸法精度、導電性およびガス不浸透性に優れた燃料電池用セパレータおよび該燃料電池用セパレータを用いた発電効率に優れた燃料電池に関する。

## 【0002】

【従来の技術】燃料電池は、高い発電効率を有し汚染物質の発生量が少ない発電装置としてその将来が期待されている。燃料電池の種類としては、電解質の種類により、アルカリ型、りん酸型、溶融炭酸塩型、固体電解質型、固体高分子型などが挙げられ、これらの内、固体高分子型燃料電池は、発電温度が $80\sim 100^\circ\text{C}$ と低いため、家庭用の小規模発電装置、電気自動車などの可搬用の発電装置として注目されている。

【0003】図1に、固体高分子型燃料電池の構成を斜視図によって示す。なお、図1において、1は固体高分子電解質板、2は空気極、3は燃料極、4はセパレータ、5はガス流路用の溝を示す。図1に示すように、固体高分子型燃料電池は固体高分子電解質板1の両側に空気極2および燃料極3を設け単位セルを形成せしめ、セパレータ4を介して積層したものである。

【0004】固体高分子電解質としては、主にパーフルオロカーボンスルホン酸(PFSA)イオン交換膜などが用いられる。一方、セパレータ4には、燃料ガスと酸化性ガスを分離するための境界としての機能と単位セル間の電気導体としての機能が要求されるため、優れたガス不浸透性、熱伝導性、機械的強度を有し、低電気比抵抗、低体積抵抗率および作動温度における耐熱性を有することが要求される。

【0005】従来、この種のセパレータとしては、人造黒鉛を機械加工したもの、またはチタン、ステンレスなどの金属材料を機械加工したものが検討されていた。しかしながら、人造黒鉛を機械加工したセパレータは、電気伝導性に優れるが、ガス不浸透性が不十分であり、また非常に高価であるという問題がある。また、金属材料を機械加工したセパレータの場合は、長期の使用により酸化されてしまい、また上記と同様に高価であるという問題があった。

【0006】上記した問題点を解決するためのセパレータとして、人造黒鉛粉末に熱硬化性樹脂を配合して成形した固体高分子型燃料電池のセパレータが開示されている(特開平10-334927号公報、特開平11-297337号公報参照)。上記したセパレータは、ガス不浸透性、酸化の問題は改善されるが、寸法精度に問題があり、厚み方向の寸法精度に優れたセパレータを得ることは困難である。

【0007】すなわち、通常、燃料電池は、前記した図1に示すように、水素などの燃料ガス、空気などの酸化性ガスを供給するためのガス流路用の溝5を、セパレータ側、すなわちセパレータの両面に形成する。この場合、ガス流路用の溝5の深さが不均一であると、ガスの通気抵抗が溝毎に異なり燃料電池内におけるガスの流量に分布が生じ、発電効率に優れた燃料電池を製造することが困難となる。

【0008】また、燃料電池用セパレータに要求される重要な性能として、低電気比抵抗、低体積抵抗率が挙げられる。すなわち、近年、燃料電池の小型化などのために、電気比抵抗や体積抵抗率を下げて導電性を向上させ、発電効率を上げたいという要望が高まっている。このため、特開平4-214072号公報において、メソカーボン小球体の黒鉛化物や黒鉛粉などの炭素質粉末と炭素繊維とフェノール樹脂との組成物を硬化、焼成してなる燃料電池用セパレータが開示されている。

【0009】しかしながら、上記したセパレータは、炭素質粉末：50～150重量部に対してフェノール樹脂を100重量部配合しており、樹脂成分が多く、後記するように、硬化させただけでは十分な導電性を得難い。この結果、上記したセパレータにおいては、硬化物を焼成し、黒鉛化する必要があるが、通常、黒鉛化には $2000\sim 3000^\circ\text{C}$ という非酸化性雰囲気下での高温処理が必要であり、設備面、操業面およびエネルギー面から工業的に採用す

る上で問題がある。

#### 【0010】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、前記した従来技術の問題点を解決し、寸法精度、導電性およびガス不浸透性のいずれにも優れた燃料電池用セパレータを工業的に有利な方法で得ることが可能な燃料電池用セパレータ、並びに該燃料電池用セパレータを用いた発電効率に優れた燃料電池を提供することを目的とする。

#### 【0011】

【課題を解決するための手段】第1の発明は、メソカーボン小球体の黒鉛化物粗粒粉末：100重量部に対して熱可塑性樹脂：3～30重量部を含有する成形品であって、前記黒鉛化物粗粒粉末が、 $50\mu\text{m} < \text{粒径} \leq 300\mu\text{m}$ 、比表面積 $\leq 1.5\text{m}^2/\text{g}$ 、粉末粒子の平均アスペクト比 $\leq 3$ の黒鉛化物粉末であることを特徴とする燃料電池用セパレータである。

【0012】前記した第1の発明においては、前記成形品が、前記黒鉛化物粗粒粉末：100重量部に対して粒径が下記式(1)を満足するメソカーボン小球体の黒鉛化物細粒粉末：100重量部以下を含有することが好ましく、該黒鉛化物細粒粉末を1～100重量部を含有することがより好ましい(第1の発明の第1の好適態様)。

黒鉛化物細粒粉末の粒径 $\leq 50\mu\text{m}$  ……(1)

また、前記した第1の発明、第1の発明の第1の好適態様においては、前記成形品が、前記黒鉛化物粗粒粉末：100重量部に対してバルクメソフェーズピッチの黒鉛化物粉末、黒鉛粉末、カーボンブラックおよび微細炭素繊維から選ばれる1種または2種以上を合計量で100重量部以下含有することが好ましく、該合計量で1～100重量部含有することがより好ましい(第1の発明の第2の好適態様、第3の好適態様)。

【0013】また、前記した第1の発明の第2の好適態様、第3の好適態様においては、前記バルクメソフェーズピッチの黒鉛化物粉末の平均粒径が $50\mu\text{m}$ 以下、黒鉛粉末の平均粒径が $50\mu\text{m}$ 以下、カーボンブラックの平均粒径が $100\text{nm}$ 以下、微細炭素繊維の平均繊維径が $2\mu\text{m}$ 以下、平均繊維長が $500\mu\text{m}$ 以下であることが好ましい(第1の発明の第4の好適態様、第5の好適態様)。

【0014】第2の発明は、前記した第1の発明、第1の発明の第1の好適態様～第5の好適態様のいずれかに記載の燃料電池用セパレータを用いたことを特徴とする燃料電池である。また、前記した第2の発明の好適態様の燃料電池は、固体高分子電解質板の片面側に空気極を、他の片面側に燃料極を設けることによって形成された単位セルを、前記した第1の発明、第1の発明の第1の好適態様～第5の好適態様のいずれかに記載の燃料電池用セパレータを介して積層した固体高分子型燃料電池である(第2の発明の好適態様)。

【0015】また、前記した第1の発明、第1の発明の第1の好適態様～第5の好適態様、第2の発明、第2の

発明の好適態様においては、前記した熱可塑性樹脂が、ポリプロピレン樹脂、ポリスチレン樹脂、ポリアミド樹脂、ポリエステル樹脂、ポリカーボネート樹脂、ポリフェニレンサルファイド樹脂、液晶樹脂およびフッ素樹脂から選ばれる1種または2種以上であることが好ましい。

【0016】なお、本発明において、重量部における重量とは質量を意味し、例えばメソカーボン小球体の黒鉛化物粗粒粉末：100重量部に対して、熱可塑性樹脂：3～30重量部を含有することは、上記黒鉛化物粗粒粉末：100質量部に対して、熱可塑性樹脂：3～30質量部を含有することを意味する。

#### 【0017】

【発明の実施の形態】以下、本発明をさらに詳細に説明する。本発明者らは、前記した課題を解決するために鋭意検討した結果、下記知見[I]～[III]を見出し、本発明に至った。

[I] 粒子特性を規定したメソカーボン小球体黒鉛化物粉末の使用による燃料電池用セパレータのガス不浸透性(ガス遮断性)および寸法精度の向上：

[I-1] メソカーボン小球体黒鉛化物粉末の粒径および比表面積の規定による燃料電池用セパレータのガス不浸透性(ガス遮断性)の向上：本発明者らは、結合剤(樹脂)が少量であっても、ガス遮断性を低下させることなく骨材同士を強固に結合させる方法に関して鋭意検討した結果、骨材粉末の比表面積が大きな影響を及ぼすと考えた。

【0018】すなわち、セパレータ製造時には、結合剤が骨材粒子同士を接着するが、骨材の粒径が小さい場合は、骨材の全表面積が非常に大きくなり、添加した結合剤の大部分が骨材の表面の被覆に使用されてしまい、骨材粒子同士の間の空隙を埋めるのに必要な結合剤の量が不足する。この結果、結合剤(樹脂)が少量の場合、得られるセパレータは隙間の多い構造となり、ガス遮断性が低下すると考えた。

【0019】このため、本発明においては、骨材として粒径が $50\mu\text{m}$ を超える粒径の大きなメソカーボン小球体の黒鉛化物粉末(：黒鉛化物粗粒粉末)を用い、比表面積を $1.5\text{m}^2/\text{g}$ 以下と小さくした。この結果、骨材表面を被覆する結合剤の量がより少なくなり、骨材粒子同士の間の空隙を埋めるのに必要な結合剤の量が確保でき、得られるセパレータは隙間の少ない構造となり、ガス遮断性が向上する。

【0020】[I-2] アスペクト比の小さいメソカーボン小球体黒鉛化物粗粒粉末の使用による燃料電池用セパレータの寸法精度の向上：燃料電池用セパレータの原料の一部として、粉末粒子の平均アスペクト比が3以下のメソカーボン小球体の黒鉛化物粗粒粉末(以下、メソカーボン小球体黒鉛化物粗粒粉末とも記す)を用いることによって、寸法精度に優れた燃料電池用セパレータを得る

ことができる。

【0021】これは、メソカーボン小球体黒鉛化物粗粒粉末の粒子は、平均アスペクト比が3以下であり、ほぼ球状の形態を有しており、燃料電池用セパレータの成形時の流動性に優れ、かつ、等方性の成形体となり易いためと考えられる。

【II】樹脂配合量の規制による燃料電池用セパレータの導電性の向上：前記したように、メソカーボン小球体黒鉛化物粗粒粉末の粒径および比表面積を規定することによって結合剤（樹脂）の添加量を低減できるため、樹脂配合量を規制することによって、セパレータ成形品を従来のように焼成、黒鉛化せずとも十分な導電性（低電気比抵抗、低体積抵抗率）を得ることができる。

【0022】【III】微細炭素粉末、微細炭素繊維の使用による燃料電池用セパレータの導電性の向上：セパレータ成形品中に、メソカーボン小球体の黒鉛化物粗粒粉末に加えて、さらに、メソカーボン小球体の黒鉛化物細粒粉末、バルクメソフェーズピッチの黒鉛化物粉末、黒鉛粉末、カーボンブラックである微細炭素粉末、微細炭素繊維を含有せしめることによって、メソカーボン小球体の黒鉛化物粗粒粉末の粒子同士の電氣的導通を確実にすることができ、燃料電池用セパレータの導電性（低電気比抵抗、低体積抵抗率）をさらに向上することが可能となる。

【0023】以下、上記した【I】粒子特性を規定したメソカーボン小球体の黒鉛化物粗粒粉末の使用、【II】樹脂配合量の規制、【III】微細炭素粉末、微細炭素繊維の使用、および【IV】燃料電池用セパレータの製造方法、【V】燃料電池の順に説明する。

【I】粒子特性を規定したメソカーボン小球体の黒鉛化物粗粒粉末の使用：前記した図1に示すように、固体高分子型燃料電池用セパレータなど燃料電池用セパレータは、成形時にセパレータの両面に溝が設けられることが多く、溝の幅および深さは、セル内における反応の均一性の面から、非常に寸法精度の高い幅および深さが要求される。

【0024】本発明者らは、前記した従来技術における人造黒鉛粉末を用いた場合のセパレータの寸法精度の問題は、人造黒鉛粉末の粒子の形状によると考えた。すなわち、人造黒鉛粉末を炭素質材料すなわち骨材の主原料として使用した場合、人造黒鉛粉末は、通常、粉末粒子の形状が鱗片状であるため、セパレータ成形時に人造黒鉛粉末の粒子が平面方向に並び易く、後記する実施例で示す溝深さの平均値に対する平均二乗誤差が $\pm 5 \times 10^{-2}$  mm以内の溝付き燃料電池用セパレータを得ることが難しい。

【0025】これに対して、本発明の粒子特性を規定したメソカーボン小球体の黒鉛化物粗粒粉末を骨材として用いたセパレータの場合には、セパレータ成形時の骨材粒子の流動性が優れかつ充填性が優れるため、溝深さの

平均値に対する平均二乗誤差の値が $\pm 5 \times 10^{-2}$  mm以内という非常に寸法精度に優れかつ低電気比抵抗、低体積抵抗率の燃料電池用セパレータが得られる。

【0026】すなわち、本発明の第1の特徴は、寸法精度に優れた燃料電池用セパレータを得るために、特定の粒径範囲および特定の粒子形状を有するメソカーボン小球体の黒鉛化物粗粒粉末を用いた点である。本発明に用いるメソカーボン小球体の黒鉛化物粗粒粉末は、下記の方法で得ることができる。

【0027】すなわち、①石炭系のピッチおよび／または石油系のピッチを熱処理した際にピッチマトリックス中に生成する光学的異方性を示すメソカーボン小球体をろ過して得られた自己焼結性を有する炉過残渣および／または②上記光学的異方性を示すメソカーボン小球体をタール中油などの有機溶媒を用いて抽出、分離して得られた自己焼結性を有するメソカーボン小球体を炭化、黒鉛化処理して塊状化する。

【0028】次に、得られた塊状の黒鉛化物を粉砕、分級処理してメソカーボン小球体の黒鉛化物粗粒粉末を得る。一般の人造黒鉛の塊状物を粉砕処理した場合には、図2の電子顕微鏡写真に示すように、粉末粒子のアスペクト比が大きな粒子形状が板状の粉末しか得られない。

【0029】これに対して、メソカーボン小球体の塊状の黒鉛化物を粉砕、分級処理すると、図3に示す電子顕微鏡写真から明らかなように、粉末粒子のアスペクト比が小さく、比表面積の小さな粒子形状が球状に近い粗粒粉末が得られる。本発明においては、メソカーボン小球体を好ましくは2500～3000℃の温度で炭化、黒鉛化して得られたメソカーボン小球体の黒鉛化物粗粒粉末を用いる。

【0030】また、緻密でガス不浸透性に優れ、導電性に優れたセパレータを得るためには、メソカーボン小球体の黒鉛化物粗粒粉末の粒径が $50 \mu\text{m}$  超え、 $300 \mu\text{m}$  以下、黒鉛化物粗粒粉末の比表面積が $1.5 \text{ m}^2/\text{g}$  以下、黒鉛化物粗粒粉末の粉末粒子の平均アスペクト比が3以下である。黒鉛化物粗粒粉末の粉末粒子の粒径が $50 \mu\text{m}$  以下の場合、または粉末の比表面積が $1.5 \text{ m}^2/\text{g}$  を超える場合、得られるセパレータのガス不浸透性が悪くなる。

【0031】また、黒鉛化物粗粒粉末の粉末粒子の粒径が $300 \mu\text{m}$  を超える場合は、得られるセパレータの寸法精度が出にくくなり、粉末粒子の平均アスペクト比が3を超える場合、粉末粒子の充填性が低下し、得られるセパレータの導電性および寸法精度が悪くなる。なお、本発明における粉末粒子の平均アスペクト比とは、電子顕微鏡写真における各粒子の投影図の各粒子についての最大長さと最小長さの比の平均値を示す。

【0032】また、前記黒鉛化物粗粒粉末の粉末粒子の平均アスペクト比の下限値は、球体の粉末粒子のアスペクト比 $[=1]$  である。本発明においては、前記したメソカーボン小球体製造時の抽出条件、塊状黒鉛化物の粉

碎条件などを制御することによって、黒鉛化物粗粒粉末の粉末粒子の粒径、平均アスペクト比および黒鉛化物粗粒粉末の比表面積を制御することができる。

【0033】[II]樹脂配合量の規制：本発明においては、前記したメソカーボン小球体の黒鉛化物粗粒粉末などを含有する樹脂成形品（以下、炭素質成形体とも記す）であるセパレータ成形品を黒鉛化せずに、十分な導電性（低電気比抵抗、低体積抵抗率）を有する燃料電池用セパレータを得ることを一つの大きな目標とした。

【0034】このため、本発明においては、球状に近いメソカーボン小球体の黒鉛化物粗粒粉末を用い、充填密度を向上させると共に、樹脂含有量を少なくすることにより、メソカーボン小球体の黒鉛化物粗粒粉末の粒子同士の接触確率を高める。この結果、本発明によれば、セパレータ成形品を焼成、黒鉛化せずとも、十分な導電性を得ることができる。

【0035】本発明においては、熱可塑性樹脂としては、ポリプロピレン樹脂、ポリスチレン樹脂、ポリアミド樹脂、ポリエステル樹脂、ポリカーボネート樹脂、ポリフェニレンサルファイド樹脂、液晶樹脂およびフッ素樹脂から選ばれる1種または2種以上を用いることが好ましい。これは、これらの樹脂を用いることによって、良好な成形性が得られ、溝の寸法精度に優れた溝付き燃料電池用セパレータを得ることができるためである。

【0036】また、本発明においては、熱可塑性樹脂としては、融点が150℃以上、より好ましくは融点が200℃以上の結晶性熱可塑性樹脂および／または軟化温度が90℃以上、より好ましくは軟化温度が150℃以上の非晶性（無定形）熱可塑性樹脂を用いることが好ましい。また、本発明においては、融点が150℃以上、300℃以下の結晶性熱可塑性樹脂および／または軟化温度が90℃以上、250℃以下の非晶性（無定形）熱可塑性樹脂を用いることがより好ましい。

【0037】さらに、本発明においては、融点が200℃以上、300℃以下の結晶性熱可塑性樹脂および／または軟化温度が150℃以上、250℃以下の非晶性（無定形）熱可塑性樹脂を用いることがさらに好ましい。これは、融点が150℃以上の結晶性熱可塑性樹脂、軟化温度が90℃以上の非晶性熱可塑性樹脂を用いることによって、耐熱性に優れた燃料電池用セパレータを得ることができ、逆に、融点が300℃を超える結晶性熱可塑性樹脂、軟化温度が250℃を超える非晶性熱可塑性樹脂を用いる場合、成形性が低下するためである。

【0038】熱可塑性樹脂の含有量は、前記したメソカーボン小球体の黒鉛化物粗粒粉末：100重量部に対して、熱可塑性樹脂：3～30重量部であり、より好ましくは、5～30重量部であり、さらに好ましくは10～25重量部である。熱可塑性樹脂の含有量が、3重量部未満の場合、セパレータの内部に気孔が多数発生し、ガス不浸透性に優れた燃料電池用セパレータが得られず、30重量部

を超える場合、電気比抵抗値、体積抵抗率が高くなる。

【0039】なお、前記した本発明における重量部は、いずれも、成形後の各重量部を示す。本発明によれば、熱可塑性樹脂の含有量を上記した範囲に規制することによって、セパレータ成形品を焼成、黒鉛化することなく、ガス不浸透性に優れ、低電気比抵抗値、低体積抵抗率の燃料電池用セパレータを得ることができる。

【0040】[III]微細炭素粉末、微細炭素繊維の使用：本発明においては、セパレータ成形品中に、前記したメソカーボン小球体の黒鉛化物粗粒粉末に加えて、さらに、メソカーボン小球体の黒鉛化物細粒粉末、パルクメソフェーズピッチの黒鉛化物粉末、黒鉛粉末、カーボンブラックである微細炭素粉末、微細炭素繊維を含有せしめることによって、メソカーボン小球体の黒鉛化物粗粒粉末の粒子同士の電氣的導通を確実にすることができる。

【0041】すなわち、上記した微細炭素粉末、微細炭素繊維を、メソカーボン小球体の黒鉛化物粗粒粉末の粒子間に介在せしめることによって、燃料電池用セパレータの導電性（低電気比抵抗、低体積抵抗率）をさらに向上することが可能となる。以下、本発明における微細炭素粉末、微細炭素繊維について述べる。

〔メソカーボン小球体の黒鉛化物細粒粉末：〕本発明の燃料電池用セパレータにおいては、粒径が50 $\mu\text{m}$  超え、300 $\mu\text{m}$  以下であるメソカーボン小球体の黒鉛化物粗粒粉末：100重量部に対して粒径が下記式(1)を満足するメソカーボン小球体の黒鉛化物細粒粉末：100重量部以下、より好ましくは上記黒鉛化物細粒粉末：1～100重量部を含有することが好ましい。

【0042】

黒鉛化物細粒粉末の粒径 $\leq 50\mu\text{m}$  ……(1)

上記した黒鉛化物細粒粉末の含有量が1重量部未満の場合は、電気比抵抗および体積抵抗率の低下効果が少なく、逆に100重量部を超える場合、成形性が低下し、前記した燃料電池用セパレータの溝深さの平均値に対する平均二乗誤差が $\pm 5 \times 10^{-2} \text{mm}$ 以内のセパレータを得ることが難しくなる。

【0043】また、上記した黒鉛化物細粒粉末の含有量が100重量部を超える場合、それらのセパレータ中における分散性も不均一となり、導電性の面からも好ましくない。本発明に用いる上記したメソカーボン小球体の黒鉛化物細粒粉末としては、下記①～③から選ばれる1種または2種以上を用いることが好ましい。

【0044】①前記したメソカーボン小球体の黒鉛化物粗粒粉末の粉砕品で、粒径が50 $\mu\text{m}$ 以下のもの。

②石炭系のピッチおよび／または石油系のピッチを熱処理した際に生成する光学的異方性を示す小球体をろ過して得られたろ過残渣を、タール油などで洗浄処理し、自己焼結性を付与するバインダー成分を洗い流した後、焼成、黒鉛化したもので、粒径が50 $\mu\text{m}$  以下のもの。



【0045】③上記光学的異方性を示す小球体を沈澱法などの比重分離によって分離したものを、タール油などで洗浄処理し、自己焼結性を付与するバインダー成分を洗い流した後、焼成、黒鉛化したもので、粒径が $50\mu\text{m}$ 以下のもの。図4に、上記したメソカーボン小球体の黒鉛化物粗粒粉末の電子顕微鏡写真の一例を示す。

【0046】本発明によれば、上記したメソカーボン小球体の黒鉛化物粗粒粉末である微細炭素粉末をメソカーボン小球体の黒鉛化物粗粒粉末の粒子間に介在せしめることによって、燃料電池用セパレータの導電性（低電気比抵抗、低体積抵抗率）をさらに向上することが可能となる。

〔バルクメソフェーズピッチの黒鉛化物粉末、黒鉛粉末、カーボンブラックおよび微細炭素繊維：〕さらに、本発明の燃料電池用セパレータにおいては、粒径が $50\mu\text{m}$ を超え、 $300\mu\text{m}$ 以下であるメソカーボン小球体の黒鉛化物粗粒粉末：100重量部に対してバルクメソフェーズピッチの黒鉛化物粉末、黒鉛粉末、カーボンブラックおよび微細炭素繊維から選ばれる1種または2種以上を合計量で100重量部以下含有することが好ましく、上記合計量が1～100重量部であることがより好ましく、上記合計量が2～30重量部であることがさらに好ましい。

【0047】上記合計量が、1重量部未満の場合は、電気比抵抗および体積抵抗率の低下効果が少なく、逆に100重量部を超える場合、成形性が低下し、前記した燃料電池用セパレータの溝深さの平均値に対する平均二乗誤差が $\pm 5 \times 10^{-2}\text{mm}$ 以内のセパレーターを得ることが難しくなる。また、上記合計量が、100重量部を超える場合、それらのセパレータ中における分散性も不均一となり、導電性の面からも好ましくない。

【0048】本発明における上記したバルクメソフェーズピッチの黒鉛化物粉末、黒鉛粉末、カーボンブラックおよび微細炭素繊維としては下記の黒鉛化物粉末、黒鉛粉末、カーボンブラックおよび微細炭素繊維を用いることが好ましい。

（バルクメソフェーズピッチの黒鉛化物粉末：）本発明におけるバルクメソフェーズピッチの黒鉛化物粉末としては下記で述べる黒鉛化物粉末を用いることが好ましい。

【0049】すなわち、石油系または石炭系の重質油あるいは石油系または石炭系のピッチを $350\sim 500^\circ\text{C}$ で加熱すると、加熱初期にメソカーボン小球体と称する光学的に異方性の球状体が母液中に生成し、更に加熱を続けると、メソカーボン小球体同士が合体、成長を繰り返して母液全体が光学的に異方性の物質（バルクメソフェーズピッチ）となる。

【0050】上記で得られたバルクメソフェーズピッチを粉砕、分級後、好ましくは $2000\sim 3000^\circ\text{C}$ で黒鉛化してバルクメソフェーズピッチの黒鉛化物粉末を得る。なお、上記した黒鉛化物粉末は、バルクメソフェーズピッチ

チを黒鉛化した後に、粉砕、分級することによって製造することもできる。バルクメソフェーズピッチを製造する石炭系のピッチおよび／または石油系のピッチ中のキノリン不溶分量（：QI）は5質量%以下であることが好ましい。

【0051】これは、キノリン不溶分量（：QI）が5質量%を超えるピッチを原料として製造した黒鉛化物粉末を使用した場合には、最終的に得られるセパレータの電気比抵抗値および体積抵抗率が高くなるためである。バルクメソフェーズピッチの黒鉛化物粉末の平均粒径は $50\mu\text{m}$ 以下であることが好ましく、さらには上記平均粒径が $30\mu\text{m}$ 以下であることがより好ましい。

【0052】これは、上記したバルクメソフェーズピッチの黒鉛化物粉末である微細炭素粉末を、メソカーボン小球体の黒鉛化物粗粒粉末の粒子間に介在せしめることによって、燃料電池用セパレータの導電性（低電気比抵抗、低体積抵抗率）をさらに向上することが可能となるためである。

（黒鉛粉末：）本発明における黒鉛粉末としては、人造黒鉛粉末および／または天然黒鉛粉末が好ましく、純度が95%以上のもので、平均粒径が $50\mu\text{m}$ 以下のものが好ましく、より好ましくは平均粒径が $10\mu\text{m}$ 以下である。

【0053】純度が95%未満の場合は、不純物質として含まれている金属塩が燃料電池の特性の安定性を阻害し易い。また、平均粒径が $50\mu\text{m}$ を超えると、メソカーボン小球体の黒鉛化物粗粒粉末との均一混合性が悪くなり、燃料電池用セパレータの導電性向上効果が低下し易い。

【0054】黒鉛粉末の平均粒径の下限は特に制限されるものではない。なお、人造黒鉛粉末は、例えば無定形炭素を $2500\sim 4000^\circ\text{C}$ で加熱処理して得られた黒鉛の粉末であり、通常は鱗片状の粉末である。天然黒鉛粉末は、天然に産出する黒鉛の粉末であり、通常は、人造黒鉛粉末よりも黒鉛化が進んだ鱗片状の粉末である。

【0055】（カーボンブラック：）カーボンブラックとしては、純度が95%以上のもので、平均粒径が $100\text{nm}$ 以下のものが好ましい。純度が95%未満の場合は、人造黒鉛粉末、天然黒鉛粉末の場合と同様に、不純物質として含まれている金属塩が燃料電池の特性の安定性を阻害し易い。

【0056】また、平均粒径が $100\text{nm}$ を超えると、導電性向上効果が低下し易い。カーボンブラックの平均粒径の下限は特に制限されるものではない。なお、本発明における前記したメソカーボン小球体の黒鉛化物粗粒粉末およびメソカーボン小球体の黒鉛化物粗粒粉末の粒径、バルクメソフェーズピッチの黒鉛化物粉末、黒鉛粉末およびカーボンブラックの平均粒径は、後記する実施例に示す測定法によって求めることができる。

【0057】（微細炭素繊維：）本発明における微細炭素繊維としては、平均繊維径（直径）が $2\mu\text{m}$ 以下であ